

# GENETICKÁ SYNTÉZA DIFRAKČNÉHO PROFILU

## GENETIC SYNTHESIS OF THE DIFFRACTION PROFILE

Stanislav Jurečka<sup>1</sup>, Milan Havlík<sup>2</sup>, Mária Jurečková<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Katedra základov inžinierstva, EF ŽU, DP v L. Mikuláši, kpt Nálepku 1390, 03101 L. Mikuláš

<sup>2</sup> Ústav metalurgie a materiálov, HF TU Košice, Letná 9, 04200 Košice

<sup>3</sup> Katedra matematiky, Vojenská akadémia, 03119 L. Mikuláš

**Abstrakt** V článku popisujeme teoretickú syntézu röntgenového difrakčného profilu ako superpozíciu spektrálnych komponent  $K\alpha_1$  a  $K\alpha_2$ , optimalizovanú voči experimentálnym údajom metódou genetického algoritmu a nelineárnymi optimalizačnými metódami 'Nelder-Mead downhill simplex' a Levenberg-Marquardtovou metódou. Výsledkom takejto kombinácie globálnych a lokálnych optimalizačných metód je matematický model difrakčného profilu, umožňujúci spoľahlivé určovanie charakteristík difrakčnej línie pre účely analýzy vlastností štruktúry materiálu. Uvádžeme tiež experimentálne výsledky pri implementácii jednotlivých optimalizačných procedúr.

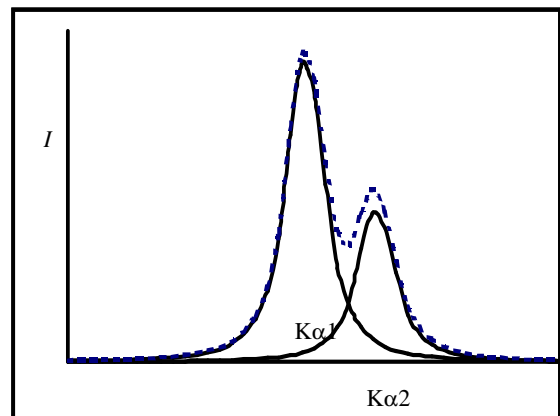
**Summary** In this paper we describe theoretical synthesis of the x-ray diffraction line profile as a superposition of the spectral components  $K\alpha_1$  and  $K\alpha_2$  optimized to the experimental data by the genetic algorithm and nonlinear optimization methods 'Nelder-Mead downhill simplex' and Levenberg-Marquardt method. Such combination of global and local optimization methods results in a mathematical model of the diffraction profile, providing reliable determining of diffraction line characteristics for the material structure properties study. Experimental results of the optimization procedures are given too.

### 1. ÚVOD

Vlastnosti mikroštruktúry materiálu významne ovplyvňujú proces difrakcie röntgenového žiarenia a tvar registrovaných difrakčných maxím. Z uhlovej závislosti tvaru difrakčných maxím je preto možné určovať celý rad mikroštruktúrnych charakteristík – veľkosť oblastí koherentného rozptylu, mikrodeformácie kryštálovej mriežky, hustotu dislokácií a podobne. Pri riešení týchto úloh má zásadný význam tvorba matematického modelu, popisujúceho tvar experimentálne určeného difrakčného obrazu na základe analýzy vplyvov vlastností kryštalickej štruktúry na procesy difrakcie. Pri modelovaní tvaru experimentálnych difrakčných profilov sa používa celý rad analytických funkcií. Veľmi dobré výsledky sa dosahujú pri použití konvolúcie Gaussovej a Cauchyho funkcie a pri použití Pearson VII funkcie. V článku popisujeme syntézu matematického modelu röntgenového difrakčného profilu pri implementácii funkcie Pearson VII pomocou optimalizačných metód na báze genetických algoritmov (GA) a porovnanie výsledkov optimalizačného procesu GA s optimalizáciou modelovej funkcie metódami Levenberg-Marquardt a Nelder-Mead simplex.

### 2. STRATÉGIA SYNTÉZY DIFRAKČNEJ PROFILOVEJ FUNKCIE

Pri modelovaní tvaru difrakčného profilu predpokladáme, že spektrálne komponenty  $K\alpha_1$  a  $K\alpha_2$  difraktovaného röntgenového žiarenia, ktorých superpozícia určuje priebeh intenzity difrakčného maxima, je možné charakterizovať rovnakou funkciou.



Obr. 1. Modelovanie superpozície spektrálnych zložiek  $K\alpha_1$  a  $K\alpha_2$  difrakčného profilu  
Fig. 1. Spectral components  $K\alpha_1$  nad  $K\alpha_2$  superposition modelling

Poloha zložky  $K\alpha_2$  je voči polohe  $K\alpha_1$  posunutá a intenzita je približne polovičná. Uhlovú závislosť intenzity profilu difrakčnej línie preto modelujeme ako superpozíciu dvoch vzájomne posunutých profilových funkcií Pearson VII, pričom používame modifikovanú verziu tejto profilovej funkcie [1]. Pri takomto postupe je potrebné optimalizovať hodnoty ôsmich nezávislých premenných modelovej funkcie, generujúcej teoretický difrakčný profil. Pre účely optimalizácie teoretického modelu difrakčného profilu voči experimentálnym hodnotám sme implementovali genetický algoritmus [2],[3]. Genetický algoritmus patrí medzi stochastické metódy globálnej optimalizácie, ktoré využívajú zovšeobecnené princípy prírodného evolučného procesu, objavené v molekulovej biológii. Táto

technika využíva známe evolučné operátory selekcie, kríženia a mutácie, pôsobiace na binárne reťazce, kódujúce hodnoty nezávislých premenných optimalizovanej modelovej funkcie. Na začiatku optimalizačného procesu sa v našej implementácii GA náhodne generuje počiatočná množina binárnych reťazcov (nulová populácia  $P_0$ ), reprezentujúca možné riešenia optimalizovanej funkcie. Pôsobením genetických operátorov GA produkuje nasledovníkov reťazcov nulovej populácie (populáciu  $P_1$ ), z ktorých sa počítajú nové modely difrakčného profilu. Mierou kvality každého nového reťazca v  $P_1$  je hodnota funkcie  $F$

$$F = \sum_{i=1}^n \left( \frac{(I_e(2\theta_i) - I_t(2\theta_i))^2}{I_t(2\theta_i)} \right), \quad (1)$$

charakterizujúca stupeň zhody teoretického difrakčného profilu s experimentálnym profilom.  $I_e(2\theta_i)$  je intenzita experimentálneho difrakčného profilu pri uhle difrakcie  $2\theta_i$ ,  $I_t(2\theta_i)$  je hodnota intenzity teoretického modelu difrakčného profilu pri tomto uhle,  $n$  je počet bodov experimentálneho difrakčného profilu. Typický počet reťazcov v množine  $P_0$  je rádovo stovky. Populácie tvorené menším počtom reťazcov majú tendenciu záchytu v lokálnej oblasti parametrického hyperpriestoru v dôsledku straty diverzity riešení pri dominantnom postavení určitého reťazca nulovej populácie a jeho nasledovníkov. Na druhej strane príliš veľký počet reťazcov populácie môže znížiť účinnosť konvergenzie modelovej funkcie ku globálnemu optimu v dôsledku preťaženia matematického modelu slabými reťazcami s vysokými hodnotami funkcie  $F$ . Teoretické difrakčné profily, ktoré majú nízke hodnoty funkcie  $F$  sa vyznačujú dobrou zhodou s experimentálnymi hodnotami. Pri GA optimalizácii sa pôsobením operátora selekcie zvyšuje pravdepodobnosť reprodukcie reťazcov (odovzdávania informácie obsiahnutej v danom reťazci) s nízkou hodnotou  $F$  do nasledujúcej populácie. Reťazec s najnižšou hodnotou funkcie  $F$  sa do nasledujúcej populácie kopíruje automaticky. Týmto sa zabezpečí, že kvalita matematického modelu difrakčného profilu dosiahnutá v určitom stupni evolučného optimalizačného procesu sa pri ďalšom pokračovaní GA neznižuje. Funkcia  $F$  v tvare (1) poskytuje podľa našich skúseností dobré rozlíšenie medzi vhodnými a menej vhodnými syntézami teoretického difrakčného profilu.

V priebehu GA procesu sa pôsobením genetických operátorov cyklicky generuje postupnosť nasledujúcich populácií  $P_i \rightarrow P_{i+1}$  binárnych reťazcov. Operátor selekcie vyberá z danej populácie na základe hodnoty funkcie  $F$  pár rodičovských reťazcov. Pravdepodobnosť selekcie je pritom vyššia pre reťazce s nižšou hodnotou  $F$ . Pôsobením operátora kríženia sa z týchto

rodičovských reťazcov generuje potomok. Používame pritom rozdelenie rodičovských reťazcov v dvoch náhodne vybraných bodoch a zámenny takto vytvorených úsekov pôvodných reťazcov (dvojbodové kríženie). Operátor kríženia zabezpečuje produkciu potomkov, ktoré dedia vlastnosti pôvodných rodičovských reťazcov. Pri mutácii sa mení hodnota náhodne vybraných bitov selektovaného reťazca. Operátor mutácie takto vnáša do matematického modelu difrakčného profilu novú informáciu, ktorá sa predtým v populácii  $P$  nevyskytovala a zabezpečuje tak potrebnú diverzitu evolučného optimalizačného procesu. Umožňuje prehľadávanie ďalšej časti parametrického hyperpriestoru, ktorá by bola pri použití samotného operátora kríženia nedostupná. Z reťazcov pôvodnej populácie, potomkov, generovaných krížením a mutáciou a kopírovaním reťazca s minimálnou hodnotou funkcie  $F$  sa generuje nasledujúca populácia. Tento iteračný proces sa ukončí pri dosiahnutí určitej vopred stanovenej hodnoty  $F$  alebo po určitom počte evolučných epoch. Vývoj hodnoty funkcie  $F$  monitorujeme v priebehu optimalizačného procesu graficky aj numericky. Týmto spôsobom je možné zastaviť optimalizačný proces aj v prípade, keď sa dosiahne stabilizácia konvergenzie matematického modelu počas väčšieho počtu iteračných krokov (keď sa zastaví pokles hodnoty  $F$ ).

Medzi výhody GA metódy patrí skutočnosť, že proces GA nezastavuje pri dosiahnutí lokálneho extrému v parametrickom hyperpriestore. Typickou črtou GA metódy je paralelný režim činnosti (v jednotlivých iteračných krokoch sa simultánne analyzuje veľký počet prípustných riešení) a necitlivosť na kvalitu odhadu počiatočného modelu difrakčného profilu.

### 3. SPRESNENIE MODELU DIFRAKČNÉHO PROFILU

Po určení parametrov profilovej funkcie pomocou metódy GA sa spresňuje matematický model metódami nelineárnej multiparametrickej optimalizácie. Implementovali sme metódu Levenberg - Marquardt a metódu Nelder - Mead simplex. Levenberg-Marquardtova metóda je modifikáciou Gauss-Newtonovej optimalizačnej metódy. Využíva aproximáciu Hessiánu a rieši aj problémy s jeho veľmi malými vlastnými hodnotami [4], [5]. Je to štandardná metóda optimalizácie diferencovateľných funkcií, ktoré nemajú príliš veľký počet premenných.

Simplexová metóda konštruje v parametrickom priestore pri optimalizácii geometrickú formu - tzv. simplex a s jeho vrcholmi prevádza celý rad geometrických transformácií. Pri týchto transformáciách sa simplex presúva k lokálnemu minimu modelovej funkcie. Metóda je robustná, nevyužíva derivácie modelovej funkcie a

pracuje aj v relatívne komplikovanej štruktúre parametrického hyperpriestoru [6], [7].

#### 4. PRAKTICKÁ REALIZÁCIA SYNTÉZY DIFRAKČNÉHO PROFILU

Procedúry optimalizácie difrakčných profilov sme realizovali v prostredí Delphi. V hlavnom menu aplikácie sú implementované procedúry pre prácu s experimentálnymi údajmi, ich konverzia zo štandardných datových štruktúr bežných difraktometrov, zobrazovanie a archivácia. Pred matematickým modelovaním difrakčného profilu sa separuje pozadie difrakčného obrazu a vhodne sa prefiltruje šumová zložka experimentálnych údajov. Pri separácii pozadia používame v úzkom intervale difrakčných uhlov v profilovej oblasti lineárnu aproximáciu priebehu pozadia. Pre účely filtrácie šumu sú implementované viaceré FIR filtre, Fourierovská filtrácia, sada waveletových filtrov a Volterrov nelineárny filter. Vplyv aplikovaného číslicového filtra sa posudzuje subjektívne a oblasť ostrého difrakčného maxima je možné z procesu filtrácie vynechať aby sa deformáciou tvaru profilu neznehodnotila informácia, špecificky viazaná na tento priebeh. Základný odhad parametrov modelovej funkcie sa robí automaticky analýzou polohy, šírky a maximálnej intenzity difrakčného profilu. Pred GA optimalizáciou sa určí počet reťazcov v populácii, počet iteračných krokov a pravdepodobnosti genetických operátorov mutácie a kríženia. Priebeh GA optimalizačného procesu sa vyhodnocuje subjektívne na základe okamžitej hodnoty fitness funkcie najlepšieho riešenia v danom iteračnom kroku (populácii). Týmto spôsobom získaný matematický model difrakčného profilu sa ešte spresňuje pomocou simplexovej alebo Levenberg – Marquardtovej metódy. V tomto štádiu tvorby matematického modelu difrakčného profilu už nie je rozhodujúce subjektívne grafické porovnanie experimentálnych a teoretických modelových hodnôt ale aj v tomto kroku používame na posúdenie kvality modelu hodnotu  $F$  určenú podľa (1). Výstupom optimalizačného procesu je komponenta  $K\alpha 1$  difrakčného profilu, ktorej tvarové charakteristiky (poloha, maximálna intenzita, FWHM, integrálna šírka a ďalšie) sa využívajú v rade difraktometrických metód určovania vlastností štruktúry materiálu. Podobným spôsobom sa spracováva aj difrakčný obraz vzorky štandardu. Charakteristiky difrakčných línii vzorky štandardu sa používajú pri dekonvolúcii prístrojových vplyvov z experimentálneho difrakčného obrazu na určenie charakteristík fyzikálneho profilu.

#### 5. ZÁVER

V článku popisujeme konkrétnu syntézu matematického modelu difrakčného profilu pomocou optimalizačných metód na báze genetického algoritmu a nelineárnych multiparametrických metód

Nelder - Mead simplex a Levenberg - Marquardt. Pri takejto kombinácii optimalizačných metód je možné dosiahnuť veľmi dobrú zhodu matematického modelu difrakčného profilu a experimentálnych údajov. Výsledný priebeh komponenty  $K\alpha 1$  je použitý v dekonvolučnej metóde pri odstránení prístrojového rozšírenia a umožňuje tak spoľahlivé riešenie problémov difrakčnej analýzy štruktúry materiálu. Výhodou genetickej optimalizácie je jej nezávislosť od kvality počiatočných podmienok. Genetický algoritmus stochasticky prehľadáva celý parametrický priestor a poskytuje vhodný vstupný model pre tradičné nelineárne multiparametrické optimalizačné metódy. Implementácia genetického algoritmu je pomerne jednoduchá a preto umožňuje veľmi komfortnú tvorbu teoretického modelu a analýzu procesu difrakcie vo väzbe na vlastnosti reálnej difraktujúcej štruktúry. Po implementácii GA optimalizácie a spresnení modelu pomocou simplexovej alebo Levenberg - Marquardtovej metódy dosahujeme veľmi nízke hodnoty súčtu štvorcov reziduálnych odchýlok teoretického modelu a experimentálnych údajov, ktoré je obťažné dosiahnuť iným spôsobom. Na ilustráciu dosiahnutej kvality matematického modelu pri jednotlivých krokoch popisovanej syntézy uvádzame v Tab. 1 hodnoty funkcie  $F$ , polohu a maximálnu intenzitu pri optimalizácii modelu difrakčnej línie vzorky paládia, meranej v Bragg-Brentanovej geometrii na difraktometri URD6 [8].

Tab. 1. Hodnoty funkcie  $F$  pri optimalizácii modelu difrakčnej línie vzorky paládia

Table 1. Function  $F$  values after the optimization of the palladium diffraction line

metóda	poloha $K\alpha 1$	$I_{\max}(K\alpha 1)$	$F$
	deg	$s^{-1}$	$s^{-1}$
počiatočný odhad	40.19538	21677	4787
GA	40.19511	21650	2547
GA+ simplex	40.19512	21647	2190
GA + LM	40.19514	21656	1341

Experimentálne údaje neboli filtrované, pozadie bolo separované štandardným spôsobom. Uvedené charakteristiky profilu difrakčnej línie sa používajú spolu s radom ďalších charakteristík (FWHM, tvarový faktor, integrálna šírka a pod.) pri riešení problémov reálnej štruktúry materiálu. V uvedenom príklade sa hodnoty týchto charakteristík pri použití rôznych optimalizačných postupov líšia veľmi málo, pričom hodnota funkcie  $F$ , charakterizujúca kvalitu matematického modelu difrakčného maxima sa mení výrazne. Znamená to, že u danej modelovej funkcie sa výrazne menia ostatné parametre. Pri hodnotení kvality optimalizovaného modelu pozorujeme veľmi výrazný vplyv tých parametrov, ktoré modifikujú tvar difrakčného profilu v oblastiach vzdialených od polohy difrakčného maxima. Spomínaná kombinácia globálnych a lokálnych optimalizačných metód umožňuje dosiahnuť vyššiu kvalitu matematického

popisu tvaru difrakčného maxima. Problematika vzájomnej väzby hodnôt parametrov optimalizovanej modelovej funkcie a reálnej štruktúry materiálu je v súčasnosti predmetom intenzívneho štúdia.

## LITERATÚRA

- [1] JUREČKA S., HAVLÍK M.: Porovnanie aproxi mačných a Fourierovských dekonvolučných metód pri analýze rtg difrakčných profilov. *Materials Structure*. 2001, vol.8, no.2, p.83-87.
- [2] GOLDBERG D.E.: *Genetic Algorithms in Search, Optimization and Machine Learning*. Addison Wesley, Reading, MA 1989.
- [3] HARRIS K.D.M., KARIUKI B.M., JOHNSTON R.L.: *Solving crystal structures from powder diffraction data in direct space – progress in the application of genetic algorithms*. In: *Advances in Structure Analysis*. Ed. Kužel R., Hašek J., CSCA Praha 2001.
- [4] LEVENBERG, K.: A Method for the Solution of Certain Problems in Least Squares. *Quart. Appl. Math.* 1944, vol.2, p.164-168.
- [5] MARQUARDT, D.: An Algorithm for Least-Squares Estimation of Nonlinear Parameters. *SIAM J. Appl. Math.* 1963, vol.11, p.431-441.
- [6] NELDER J.A., MEAD R.: *Computer Journal*. 1965, vol. 7, p. 308–313.
- [7] FIALA J., KOLEGA M.: Regresní analýza. *Materials Structure* 2000, vol.7, no.2, p.58-65
- [8] ŠUTTA P.: *Skúmanie tenkých vrstiev metódami röntgenovej práškovej difrakcie*. Habilitačná práca. Liptovský Mikuláš, Vojenská akadémia, 1998.